



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

12 Off nlegungsschrift  
10 DE 102 22 090 A 1

51 Int. Cl.7:  
H 01 M 4/86  
H 01 M 8/02

21 Aktenzeichen: 102 22 090.5  
22 Anmeldetag: 17. 5. 2002  
43 Offenlegungstag: 27. 2. 2003

DE 102 22 090 A 1

30 Unionspriorität:  
2001-151429 21. 05. 2001 JP

71 Anmelder:  
Aisin Seiki K.K., Kariya, Aichi, JP; Aisin Kako K.K.,  
Aichi, JP

74 Vertreter:  
Tiedtke, Bühling, Kinne & Partner GbR, 80336  
München

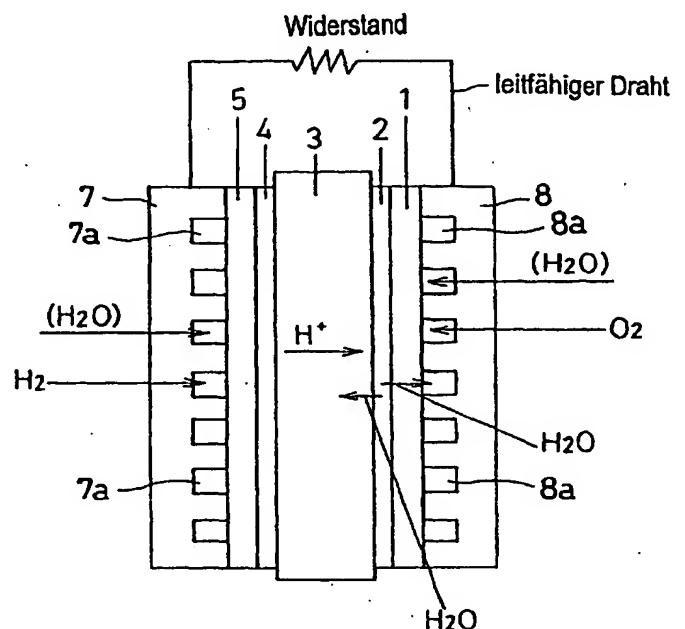
72 Erfinder:  
Tomita, Atsushi, Chiryu, Aichi, JP; Yano, Hideo,  
Nisshin, Aichi, JP; Okamoto, Hikaru, Hekinan, Aichi,  
JP; Yasui, Yoshiaki, Kariya, Aichi, JP; Sugiura, Kenji,  
Toyota, Aichi, JP

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

54 Brennstoffzelle, Elektrode für eine Brennstoffzelle und Herstellungsverfahren einer Elektrode für eine Brennstoffzelle

57 Eine Brennstoffzelle enthält eine erste Elektrode, die als Brennstoffelektrode verwendet wird, die mit einem Brennstoffgas, das Wasserstoff enthält, versorgt wird, eine zweite Elektrode, die als eine Oxidansielektrode verwendet wird, die mit einem Oxidansgas, das Sauerstoff enthält, versorgt wird, und eine feste Polymerelektrolytmembran, die zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode gehalten wird. In der Brennstoffzelle wird entweder die erste Elektrode oder die zweite Elektrode durch eine Gasdiffusionsschicht ausgebildet, die in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst wird.



DE 102 22 090 A 1

[0001] Diese Erfindung basiert auf und beansprucht die Priorität unter 35 U.S.C. §119 hinsichtlich der Japanischen Patentanmeldung Nr. 2001-151429, die am 21. Mai 2001 angemeldet wurde, wobei der ganze Inhalt davon hierin durch Bezug enthalten ist.

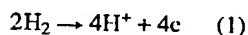
## ERFINDUNGSBEREICH

[0002] Die Erfindung bezieht sich auf eine Brennstoffzelle, eine Elektrode für eine Brennstoffzelle und auf ein Herstellungsverfahren einer Elektrode für eine Brennstoffzelle.

## HINTERGRUND DER ERFINDUNG

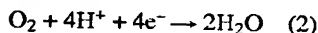
[0003] Eine schematische Darstellung einer festen Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle ist in Fig. 1 gezeigt. Die feste Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle hat eine Elektrolytmembran als ein Elektrolyt, wie in Fig. 1 gezeigt ist. Die feste Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle hat Katalysatorschichten 2 und 4, die die Elektrolytmembran 3 dazwischen enthalten. Die feste Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle hat ferner Gasdiffusionsschichten 1 und 5 auf den Außenflächen der Katalysatorschichten 2 und 4. Die Gasdiffusionsschichten 1 und 5, in denen Gas verteilt werden kann bzw. diffundiert, können elektrische Ströme sammeln. Die Gasdiffusionsschicht 1 ist ein Bauteil, das eine Oxidans-elektrode ausbildet. Die Gasdiffusionsschicht 5 ist ein Bauteil, das eine Brennstoffelektrode ausbildet.

[0004] In der Brennstoffelektrode, mit der Wasserstoffgas oder Gas, das Wasserstoff enthält, bereitgestellt wird, treten die folgenden elektrochemischen Reaktionen auf.



[0005] Das Proton  $\text{H}^+$ , das in der Brennstoffelektrode erzeugt wird, tritt durch die Elektrolytmembran 3 und bewegt sich in Richtung auf die Katalysatorschicht 2. Das Elektron  $\text{e}^-$ , das in der Brennstoffzelle erzeugt wird, bewegt sich in Richtung auf die Oxidans-elektrode durch einen Widerstand, der sowohl mit der Brennstoffelektrode als auch mit der Oxidans-elektrode durch leitfähige Leitungen elektrisch verbunden ist.

[0006] In der Oxidans-elektrode, mit der Sauerstoff oder Luft, die Sauerstoff enthält, bereitgestellt wird, wird Sauerstoff in der folgenden elektrochemischen Reaktion desoxidiert oder reduziert. Der reduzierte Sauerstoff wird mit dem Proton  $\text{H}^+$  gebunden, das von der Brennstoffelektrode bewegt wird, um Wasser auszubilden.



[0007] Ein Teil des Wassers, das in der obigen elektrochemischen Reaktion erzeugt worden ist, wird mit dem zurückbleibenden Oxidansgas, das nicht in der obigen Reaktion verwendet wird, verdunstet und beseitigt. Ein Teil des zurückbleibenden Wassers wird in die Elektrolytmembran 3 zurückkehrend aufgrund eines Konzentrationsgradienten diffundieren, dann wird der Teil des Wassers in Richtung auf die Brennstoffelektrode bewegt. Die obigen elektrochemischen Reaktionen (1) und (2) treten an einer Grenzfläche auf, bei der der Katalysator, das Elektrolyt und das Gas einander berühren.

[0008] Wie zuvor beschrieben worden ist, kann die Diffusionsschicht den elektrischen Strom sammeln. Ferner kann in den Gasdiffusionsschichten 1 und 5 Gas verteilt werden. Als Bauteile, die die Elektroden der Brennstoffzelle ausbilden, müssen die Gasdiffusionsschichten 1 und 5 folgende Funktionen haben: Ermöglichen der Gasdiffusion, Befeuchten der Elektrolytmembran 3, Befeuchten der Katalysatorschichten 2 und 4. Die Gasdiffusionsschichten 1 und 5 müssen ferner eine hohe elektrische Leitfähigkeit, thermische und chemische Stabilität, mechanische Festigkeit besitzen, um die Katalysatorschichten 2 und 4, die Elektrolytmembran 3 und dgl. zu schützen.

[0009] Unter den obigen Funktionen, die bei den Gasdiffusionsschichten 1 und 5 gefragt sind, ist es wichtig die Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 zu steuern, um das Gasdiffusionsvermögen und die Wasserführung für die Elektrolytmembran 3 und die Katalysatorschichten 2 und 4 zu steuern. Um eine hohe Ausgabespannung von der Brennstoffzelle zu erhalten, müssen mit der Grenzfläche ausreichend Gase vorgesehen werden. Die hohe Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 bringt eine ausreichende Gasversorgung zu der Grenzfläche. Die hohe Permeabilität dient ferner dazu, das Wasser von den Elektroden auszugeben, wodurch die hohe Permeabilität verhindert, dass das Wasser die Elektrode abschirmt.

[0010] Wenn die Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 übermäßig hoch ist, wird jedes Elektrolyt, das in der Elektrolytmembran 3 und in den Katalysatorschichten 2 und 4 enthalten ist, ausgetrocknet, wodurch jeder Wassergehalt des Elektrolyts verringert wird. Daher wird die Protonenleitfähigkeit der Elektrolytmembran 3 ebenso wie die Ausgabespannung der Brennstoffzelle mit der Elektrolytmembran 3 verringert. Im Allgemeinen verhindert das Befeuchten der Gase, die durch die Gasdiffusionsschichten treten, dass die Elektrolytmembran 3 und die Katalysatorschichten 2 und 4 austrocknen. Jedoch führt ein übermäßiges Befeuchten zu einer Konzentration des Wassers, wodurch feine Poren, die an die als Gaskanäle dienende Katalysatorschichten angrenzen, durch das konzentrierte Wasser abgeschirmt werden (mit anderen Worten, die Katalysatorschichten sind in Wasser getränkt). Das übermäßige Befeuchten verursacht ferner, dass der Wasserdampf in den Poren in den Gasdiffusionsschichten 1 und 5 konzentriert ist, wodurch das konzentrierte Wasser die Poren in den Gasdiffusionsschichten blockiert. Das übermäßige Befeuchten für das Gas verursacht ferner eine große Belastung auf das ganze System der Brennstoffzelle, wodurch die Leistungserzeugungseffizienz des Systems verringert ist. Wenn andererseits die Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 zu niedrig ist, und wenn das Befeuchten zu wenig ist oder gegen Null geht, sind die Katalysatorschichten 2 und 4 in Wasser getränkt, das durch die Reaktion (2) erzeugt wird, und das Wasser kann ferner die Poren der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 blockieren. Daher ist es notwendig,

die Permeabilität im Gleichgewicht hinsichtlich der Wasserführung für die Elektrolytmembran 3 und der Katalysatorschichten 2 und 4 zu halten.

[0011] Wie zuvor beschrieben worden ist, ist die Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 eine sehr wichtige Eigenschaft hinsichtlich der Wasserführung für eine Elektrolytmembran und eines Elektrodenaufbaus (MEA).

[0012] Entsprechend verschiedener Betätigungsbedingungen gibt es in Abhängigkeit von ihrem Verwendungszweck verschiedene Brennstoffzellen, wodurch die Eigenschaften der Brennstoffzellen verschieden sind, wie in den folgenden Beispielen gezeigt ist.

#### Beispiel 1

##### Bewegbare Brennstoffzelle für Fahrzeuge

[0013] Eine bewegbare Brennstoffzelle für ein Fahrzeug ist notwendig, um einen hohen elektrischen Strom unter hohem Gasdruck zu erzeugen. Die bewegbare Brennstoffzelle braucht eine hohe Reaktivität. Zusätzlich kann ein Überfluten als Nässephänomen auftreten. Um das Beseitigen von Wasser zu verbessern, müssen die Gasdiffusionsschichten 1 und 5 eine hohe Permeabilität haben.

#### Beispiel 2

##### Ortsfeste Brennstoffzelle

[0014] Eine ortsfeste Brennstoffzelle wird zum Erzeugen einer hohen Ausgabespannung in einem niedrigen elektrischen Strombereich und bei niedrigem Gasdruck hinsichtlich der für dieses System notwendigen Effizienz gebraucht. Bei der ortsfesten Brennstoffzelle kann die Elektrolytmembran 3 leicht austrocknen, wodurch die Permeabilität der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 niedrig sein muss.

[0015] Die Eigenschaften der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 sind in Abhängigkeit von dem Material der Elektrolytmembran 3, den Gasdurchgangsmustern, die in einem Trennmittel ausgebildet sind usw. verschieden. Herkömmlich ist es notwendig, ein Verfahren zum einfachen und billigen Bestimmen der vorteilhaften Eigenschaften der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 entsprechend der Betriebsbedingungen, des Materials, das die Elektrolytmembran ausbildet, der Gestalt des Trennmittels usw. einzurichten.

[0016] Ein Stand der Technik zur Herstellung der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 wird folgend beschrieben. Bei dem Stand der Technik werden Kohlenstoffschwarz (Ruß) und Wasser abweisendes Material (Polytetrafluoroethylen PTFE, usw.) und ein Dispersionsmedium zum Ausbilden einer Paste gemischt. Die Paste wird auf ein vorbestimmtes Substrat (ein Kohlenstoffpapier, ein Kohlenstoffstoff oder etwas Wasser abweisendes, das mit PTFE, usw. abgeschlossen wird) aufgetragen oder gedruckt, dann wird das resultierende Substrat erhitzt oder gebacken.

[0017] Bei dem Stand der Technik zum Herstellen der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 werden die Eigenschaften der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 basierend auf einem Porengehalt des Substrats, Quantität der Paste, die zum Imprägnieren oder Drucken des Wasser abweisenden Gehalts in der Paste verwendet wird, usw. bestimmt. Die Eigenschaft der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 betreffen einen komplexen Aggregations-Dispersionsmechanismus, der in Abhängigkeit von der Art des Materials, der Komponenten des Materials, des Mischverfahrens der Paste und dgl. variiert. Es ist schwierig, die Eigenschaft der Gasdiffusionsschichten 1 und 5 zu steuern, wie ein Designer es beabsichtigt. Wenn die Eigenschaft gesteuert wird, wie der Designer es beabsichtigt, würde der Bereich der gesteuerten Eigenschaft auf die Gesichtspunkte des Substrats oder der Paste begrenzt sein.

#### ÜBERBLICK DER ERFINDUNG

[0018] Hinsichtlich der obigen Probleme ist es eine Aufgabe der Erfindung, eine Brennstoffzelle, eine Elektrode für die Brennstoffzelle und ein Verfahren zum Herstellen der Elektrode zu schaffen, deren Permeabilität der Gasdiffusionsschichten gesteuert werden kann, und wobei die Gasdiffusionsschichten Eigenschaften haben, wie der Designer es gerade beabsichtigt.

[0019] In Übereinstimmung mit einem ersten Gesichtspunkt der Erfindung hat eine Brennstoffzelle eine erste Elektrode als eine Brennstoffelektrode, die mit Gas versorgt wird, das Wasserstoff enthält, eine zweite Elektrode als eine Oxidantselektrode, die mit Gas versorgt wird, das Sauerstoff enthält, und eine feste Polymerelektrolytmembran, die durch die erste Elektrode und die zweite Elektrode umgeben ist. In der Brennstoffzelle hat zumindest eine der oben genannten Elektroden eine Gasdiffusionsschicht, die in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst wird.

[0020] In Übereinstimmung mit einem zweiten Gesichtspunkt der Erfindung dient eine Elektrode der Erfindung zum Ausbilden einer Brennstoffelektrode und/oder einer Oxidantselektrode der Brennstoffzelle. Die Elektrode wird durch eine Gasdiffusionsschicht ausgebildet, die in der Dickenrichtung bei einem Pressverfahren gepresst wird.

[0021] In Übereinstimmung mit dem dritten Gesichtspunkt der Erfindung wird die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht, die nicht gepresst wird, höher als eine Zielpermeabilität bestimmt. Das Herstellungsverfahren der Elektrode für die Brennstoffzelle enthält ein Verfahren, bei dem die Gasdiffusionsschicht in ihrer Dickenrichtung durch ein Pressmittel so lange gepresst wird, bis die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht auf eine Zielpermeabilität reduziert ist. Bei der Brennstoffzelle, der Elektrode für die Brennstoffzelle und dem Herstellungsverfahren der Elektrode für die Brennstoffzelle, die in der Erfindung geschaffen wird, wird die Gasdiffusionsschicht in ihrer Dickenrichtung in dem Pressverfahren gepresst, dann kann die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht entsprechend einer Bestimmung oder der Betriebsbedingung der Brennstoffzelle vorteilhaft gesteuert werden. Wenn beispielsweise ein Überschwemmen leicht auftreten kann, braucht die Gasdiffusionsschicht eine hohe Permeabilität, um das Wasser ausreichend entfernen zu können. Für diesen

Fall wird die Pressintensität verringert, um die Dichte auf einen niedrigen Wert zu bringen, wodurch die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht höher sein kann.

[0022] Wenn die Elektrolytmembran leicht austrocknen kann, ist die hohe Permeabilität der Gasdiffusionsschicht nicht erwünscht. In diesem Fall wird die Pressintensität hoch bestimmt, wodurch die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht auf einen niedrigen Wert verringert wird.

#### KURZBESCHREIBUNG DER ZEICHNUNG

[0023] Die vorhergehenden und zusätzliche Merkmale und Kennzeichnendes der Erfindung werden aus der folgenden detaillierten Beschreibung mit Bezug auf die beigefügten Zeichnungen verdeutlicht, in denen gleiche Bezugszeichen gleiche Bauteile bezeichnen.

[0024] Fig. 1 zeigt eine schematische Darstellung einer Brennstoffzelle der Erfindung.

[0025] Fig. 2 zeigt eine schematische Darstellung eines Pressverfahrens für eine Gasdiffusionsschicht, in dem eine He-  
bepresse verwendet wird,

[0026] Fig. 3 zeigt eine schematische Darstellung eines anderen Pressverfahrens für die Gasdiffusionsschicht, in dem eine Walzenpresse verwendet wird,

[0027] Fig. 4 zeigt eine Darstellung, die eine Beziehung der Zellentemperaturen und der Ausgabespannungen zwischen einem MES eines ersten Beispiels und eines MES eines Bezugsbeispiels anzeigt.

#### AUSFÜHRLICHE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

[0028] In der Erfindung wird eine Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst. Vor dem Pressverfahren wird die Gasdiffusionsschicht bestimmt, um eine höhere Permeabilität als eine Zielpermeabilität zu haben.

[0029] Bei dem in Fig. 2(A) und Fig. 2(B) gezeigten Pressverfahren kann eine Presse als ein Pressmittel verwendet werden. Wie in Fig. 2(A) und Fig. 2(B) gezeigt ist, hat ein Pressstempel-Set 10 einen ersten Stempel 11 als einen oberen Stempel. Eine Gasdiffusionsschicht 1 wird zwischen die Pressflächen 11a und 12a gelegt und zwischen dem ersten Stempel und dem zweiten Stempel 12 gehalten. Die Gasdiffusionsschicht 1 wird in der Dickenrichtung mit der flachen Pressfläche 11a des ersten Stempels 11 und mit der Pressfläche 12a des zweiten Stempels 12 gepresst. Eine Formfreigabeschicht 40 wird als ein Formfreigabemittel, das in Fig. 2(A) gezeigt ist, zwischen der Gasdiffusionsschicht 1 und dem ersten Stempel 11 und der Schicht 1 und dem zweiten Stempel 12 eingelegt. Eine Formfreigabeschicht 45 in Fig. 2(B) ist überlappend auf der Pressfläche 11a des ersten Stempels 11 und auf der Pressfläche 12a des zweiten Stempels 12 angeordnet. Eine Presse, die das Pressstempel-Set 10 hat, kann durch hydraulischen Druck oder mechanischen Druck angetrieben werden. Bei einem Heißpressen mit der zuvor beschriebenen Presse haben entweder der erste Stempel 11 oder der zweite Stempel 12 oder beide ein Heizgerät.

[0030] Bei dem in Fig. 3(A) und 3(B) gezeigten Pressverfahren kann eine Walzenpresse als Presse verwendet werden. Ein Pressform-Set 20 hat eine erste Presswalzenform 21 als eine obere Form und eine zweite Walzenform 22 als eine untere Form. Die erste Walzenform 21 und die zweite Walzenform 22 werden um ihre Drehwellen gedreht, die Gasdiffusionsschicht 1 wird zwischen die erste Walzenform 21 und die zweite Walzenform 22 eingeführt, dann wird die Gasdiffusionsschicht 1 in ihrer Dickenrichtung mit einer Pressfläche 21a der ersten Walzenform 21 und mit einer Pressfläche 22a der zweiten Walzenform 22 gepresst. Durch einen Spalt zwischen der Pressfläche 21a der ersten Walzenform 21 und der Pressfläche 22a der zweiten Walzenform 22 kann die Presskraft durch Einstellen des Spaltes gesteuert werden. Die in Fig. 3(A) gezeigte Formfreigabeschicht 40 ist zwischen der Gasdiffusionsschicht 1 und der ersten Walzenform 21 und der Schicht 1 und der zweiten Walzenform 22 enthalten. Die Formfreigabeschicht 45 in Fig. 3(B) ist überlappend auf der Pressfläche 21a der ersten Form 21 und der Pressfläche 22a der zweiten Form 22 angeordnet.

[0031] Die Formfreigabeschicht 40 und die Formfreigabeschicht 45 schützen die Gasdiffusionsschicht 1 vor einem Anhaften an dem ersten Stempel 11 oder dem zweiten Stempel 12, und schützen die Gasdiffusionsschicht 1 vor der ersten Walzenform 21 oder der zweiten Walzenform 22, selbst wenn die Presskraft übermäßig hoch ist, oder die Heiztemperatur während des Pressverfahrens hoch ist. Die Formfreigabeschicht 40 und die Formfreigabeschicht 45 sind aus nicht haftendem Harz (Polyimid-Harz, Polyamid-Harz, Fluorokohlenstoff-Harz, Silikon-Harz usw.) gefertigt. Bei dem Heißpressen durch die zuvor beschriebene Presse haben entweder die erste Walzenform 21 oder die zweite Walzenform 22 oder beide das Heizgerät.

[0032] Wenn die Gasdiffusionsschicht 1, ein Trennmittel, usw., einander in der Dickenrichtung in der Brennstoffzelle überlappen, wird angenommen, dass der Oberflächendruck pro Flächeneinheit, der auf die Gasdiffusionsschicht aufgewendet wird,  $F_1$  beträgt, und wenn für die Presskraft pro Flächeneinheit, wenn die Gasdiffusionsschicht gepresst wird, ein Wert von  $F_2$  angenommen wird, ist der Kriechwiderstand der Gasdiffusionsschicht wirkungsvoll, wenn  $F_2$  größer als  $F_1$  ist.

[0033] In Übereinstimmung mit der Erfindung kann die Gasdiffusionsschicht durch Kaltpressen gepresst werden, aber es ist vorzuziehen, dass die Gasdiffusionsschicht durch Heißpressen gepresst wird. Die Gasdiffusionsschicht kann ebenfalls in dem Kaltpressverfahren gepresst werden. Wenn die Gasdiffusionsschicht Kohlenstofffaser, Kohlenstoffschwarz, Harz als Bindemittel (bspw. PTFE) enthält, wird die Gasdiffusionsschicht hart, und dann benötigt das Kaltpressen zusätzliche Presskraft für die Gasdiffusionsschicht. Bei dem Kaltpressen ist es schwierig, die Kohlenstofffaser in dem Bindemittel in der Gasdiffusionsschicht zu schieben. Alle diese Faktoren verdeutlichen, dass die Kohlenstofffaser als das Substrat der Gasdiffusionsschicht dazu neigt, beim Kaltpressen zu brechen, wobei dann die Zugkraft der Gasdiffusionsschicht verringert sein kann. Bei dem Kaltpressen wird das Bindemittel in der Gasdiffusionsschicht hart gelassen, wobei das Bindemittel selbst zum Brechen neigt, was ein Grund sein kann, warum die Diffusionsschicht bricht. Daher ist es vorzuziehen, das Heißpressen zum Erhitzen der Gasdiffusionsschicht anzuwenden. Die Temperatur zum Heizen der Druckform kann vorzugsweise auf 100 bis 350°C, insbesondere auf 200 bis 300°C bestimmt werden.

[0034] In Übereinstimmung mit der Erfindung enthält die Gasdiffusionsschicht vor dem Pressverfahren die Kohlenstofffaser als Substratfaser, die leitfähig ist, Graphitpulver, und ein Bindemittel, um die Substratfaser und das Graphitpulver zu binden. Wenn die Gasdiffusionsschicht gepresst wird, wird die Ausrichtung der Kohlenstofffaser erhöht, dann können die Substratfasern miteinander leicht in Kontakt kommen. Flockenförmiges Kristallgraphitpulver kann als das Graphitpulver verwendet werden, und das flockenförmige Kristallgraphitpulver, das ein großes Schlankheitsverhältnis (Verhältnis von Durchmesser zu Dicke) hat, kann vorzugsweise verwendet werden. Entweder 2 auf 250 oder 3 auf 100 können bspw. verwendet werden, jedoch muss das Schlankheitsverhältnis nicht auf das obige Verhältnis begrenzt sein. Wenn das Graphitpulver, insbesondere das flockenförmige Kristallgraphitpulver in der Gasdiffusionsschicht enthalten ist, werden die Kontaktflächen zwischen der Graphitfaser vergrößert, da die Graphitfasern einander durch die Partikel des Graphitpulvers berühren, wodurch dann die Leitfähigkeit der Substratfaser erhöht wird. Wenn ferner die Gasdiffusionsschicht, die ein flockenförmiges Kristallgraphitpulver enthält, gepresst wird, wird die Leitfähigkeit des Substrats weiterhin erhöht.

[0035] Daher wird die Sammelleistung für den elektrischen Strom der Gasdiffusionsschicht, die aus der Elektrode entsteht, erhöht. Natürlich kann das Graphitpulver ohne das flockenförmige Kristallgraphitpulver verwendet werden.

[0036] In Übereinstimmung mit der Erfindung wird vor dem Pressen die Gasdiffusionsschicht durch folgende Verfahren hergestellt: ein erstes Verfahren zum Herstellen eines Flüssigkeitsmaterials, das die Kohlenstofffaser usw. als Substratfaser, das Graphitpulver und das Bindemittel enthält, ein Herstellungsverfahren von nassem Papier für das erste Flüssigkeitsmaterial, um in eine Schicht geformt zu werden, und ein Schneideverfahren zum Schneiden der Schicht zu einer notwendigen Größe. Wasser als ein Dispersionsmedium wird vorzugsweise in den obigen Verfahren verwendet. Toluol, Xylen, Cyclohexan usw. können als organische Lösungsmittel verwendet werden. Das erste Flüssigkeitsmaterial kann ein organisches Dispersionsmaterial, das in dem ersten Verfahren dispergiert wird, und andere organische Bindemittel enthalten. In dem Herstellungsverfahren für nasses Papier wird das erste Flüssigkeitsmaterial in festes Material und Dispersionsmedium getrennt, dann wird das feste Material geklebt, um das schichtähnliche Papier auszubilden. Das erste Flüssigkeitsmaterial wird durch einen Filter mit einem Netz für das erste Flüssigkeitsmaterial zu festem Material und dem Dispersionsmedium gefiltert, dann wird das feste Material, das in dem Netz verbleibt, geformt, um eine dünne Schicht auszubilden. Das Bindemittel, das in dem ersten Flüssigkeitsmaterial enthalten ist, wird als brennbares Bindemittel, das herausgebrannt werden kann, vorgeschrieben. Als brennbarer Bindemittel können bspw. Fasern aus Holzpaste als organisches Material verwendet werden. Die pflanzlichen Fasern, wie Baumwolle usw., oder tierische Fasern, wie Wolle usw., können ebenfalls in einigen Fällen verwendet werden. Wenn die Substratfaser und das brennbare Bindemittel in dem ersten Flüssigkeitsmaterial auf 100 Gew.-% angenommen wird, sollte das Graphitpulver 0,5 bis 60 Gew.-% haben.

[0037] Nach dem Herstellungsverfahren für das nasse Papier wird vor dem Pressen die Gasdiffusionsschicht in den folgenden Verfahren behandelt: einem Imprägnierverfahren, bei dem ein zweites Flüssigkeitsmaterial, das hauptsächlich ein Wasser abweisendes Bindemittel enthält, mit der Schicht in Kontakt kommt, die in dem Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt worden ist, bei dem die Schicht in Poren mit dem brennbaren Bindemittel imprägniert wird, und einem Entferungsverfahren, bei dem das brennbare Bindemittel, wie Holzpaste usw., parallel mit dem Fixieren des Bindemittels, das Wasser abweisend mit der Schicht ist, durch Erhitzen beseitigt wird. Das Bindemittel ist brennbarer als die Substratfaser, wie die Kohlenstofffaser usw., die leitfähig ist und das flockenförmige Kristallgraphitpulver hat, dann wird die Substratfaser und das Graphitpulver in der Gasdiffusionsschicht nach dem Beseitigungsverfahren gehalten. Als das brennbare Bindemittel kann organisches Material, wie die Faser aus Holzpaste usw. als pflanzliche Faser und die Wolle usw. als tierische Faser, verwendet werden. Das brennbare Bindemittel wird herausgebrannt, dann werden Poren aus diesem erzeugt, wodurch die Gasdiffusionsschicht bei der Verwendung der Brennstoffzelle erhöht wird, wobei das Wasser abweisende Bindemittel ausreichend imprägniert werden kann. Fluorokohlenstoff-Harz wird vorzugsweise als Bindemittel verwendet, das Wasser abweisend ist. Polytetrafluoroethylen PTFE wird vorzugsweise als Fluorokohlenstoff-Harz verwendet. Ein Copolymer von Ethylen und Tetrafluoroethylen ETFE, ein anderes Copolymer von Tetrafluoroethylen und Perfluoralkylvinylether PFA, ein anderes Copolymer von Tetrafluoroethylen und Hexafluoropropylen usw. können ebenfalls verwendet werden. Bei dem zuvor erwähnten Imprägnierungsverfahren kann eine Suspension, in der Partikel aus Fluorokohlenstoff-Harz dispergiert sind, als zweites Flüssigkeitsmaterial verwendet werden. Es ist vorteilhaft für das obige zweite Flüssigkeitsmaterial, Kohlenstoffschwarz als leitendes Material hinzuzufügen, das aus Mikropartikeln ausgebildet wird. Bei der Verwendung von leitendem Material wird die Leitfähigkeit der Elektroden weiterhin erhöht. Für die Gasdiffusionsschicht ist es erfindungsgemäß nicht notwendig, Kohlenstoffschwarz zu enthalten. Wenn zusätzlich die Gasdiffusionsschicht Kohlenstoffschwarz enthält, kann der Kohlenstoff ohne flockenförmiges Kristallgraphit verwendet werden.

[0038] Die Elektrode der Brennstoffzelle kann eine oder keine Katalysatorschicht enthalten. Wenn die Elektrode eine Katalysatorschicht hat, überlappt die Katalysatorschicht auf der Elektrolytmembran an der Seite der Elektrode. Der Hauptbestandteil der Katalysatorschicht kann Platin usw. als Katalysator sein.

#### Beispiel

[0039] Ein Beispiel der Erfindung wird folgend mit Bezug auf einige Figuren beschrieben. Ein Zelle der in Fig. 1 gezeigten Brennstoffzelle hat eine Gasdiffusionsschicht 1 zum Ausbilden einer Oxidantenelektrode, eine Elektrolytmembran 3 als eine feste Polymerelektrolytmembran, die Gasdiffusionsschicht 5 zum Ausbilden einer Brennstoffelektrode. Eine Anzahl der obigen Zellen ist zum Ausbilden eines Brennstoffzellenstapels aufgebaut. Eine Katalysatorschicht 4, die der Elektrolytmembran 3 gegenüberliegt, ist zwischen der Gasdiffusionsschicht 5 und der Elektrolytmembran 3 angeordnet, die die Brennstoffelektrode ausbildet. Gleich wie die Katalysatorschicht 4 ist die Katalysatorschicht 2, die das Katalysatormetall, das der Elektrode 3 gegenüberliegt, stützt, zwischen der Gasdiffusionsschicht 1 und der Elektrolytmembran 3 angeordnet.

[0040] Die Gasdiffusionsschicht 5, die die Brennstoffelektrode der Zelle aufbaut, liegt einem einen Durchgang ausbildenden Bauteil 7 gegenüber. Das Durchgang ausbildende Bauteil 7 wird im Allgemeinen als ein Trennmittel bezeichnet,

das einen Gasdurchgang 7a für wasserstoffhaltiges Gas (oder reines Wasserstoffgas) als dadurch tretende Anoden-Aktivsubstanz hat. Der Gasdurchgang 7a ist auf dem einen Durchgang ausbildenden Bauteil 7 ausgebildet.

[0041] Die Gasdiffusionsschicht 1, die die Oxidanselektrode der Zelle ausbildet, liegt einem einen Durchgang ausbildenden Bauteil 8 gegenüber. Das einen Durchgang ausbildende Bauteil 8 wird im Allgemeinen als ein anderes Trennmittel bezeichnet, das einen Gasdurchgang 8a für sauerstoffhaltiges Gas (oder reines Sauerstoffgas) als dadurch tretende Kathoden-Substanz hat. Der Gasdurchgang 8a ist auf dem einen Durchgang ausbildenden Bauteil 8 ausgebildet. Zu der obigen Brennstoffzelle wird wasserstoffhaltiges Gas (oder reines Wasserstoffgas) durch den Gasdurchgang 7a bereitgestellt, und das sauerstoffhaltige Gas (oder die Luft usw.) wird durch den Gasdurchgang 8a bereitgestellt.

[0042] Die obigen Gasdiffusionsschichten 1 und 5 können auf gleiche Weise hergestellt werden. Folgend wird ein Verfahren zum Herstellen der Gasdiffusionsschicht 1 beschrieben.

[0043] In dem Beispiel wurde die Gasdiffusionsschicht 1 und MEA aus folgenden Verfahren hergestellt. Basierend auf dem in der Japanischen Patentanmeldungsoffenlegungsschrift Tokai 2000-136493 offenbarten Stand der Technik wurde die Gasdiffusionsschicht 1 wie das folgende Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt.

1. Kohlenstofffaser als Substratfaser, die leitfähig ist (Durchmesser eines Stückes: 12  $\mu\text{m}$ , Länge eines Stückes: 3 mm) und eine Pastenfaser 40 wurden hergestellt. Das Gewichtsverhältnis der Kohlenstofffaser zu der Pastenfaser betrug 60 zu 40. Flockenförmiges Kristallgraphit, dessen Gewichtsverhältnis zu der Kohlenstofffaser und der Pastenfaser gefügt. Die Kohlenstofffaser, die Holzpastenfaser und das flockenförmige Kristallgraphit wurden in Wasser als Dispersionsmedium mit einem vorzuziehenden Dispersionsmittel dispergiert, die Mischung wurde geformt, um eine Paste (das erste Flüssigkeitsmaterial) auszubilden. Der durchschnittliche Durchmesser der Partikel des flockenförmigen Kristallgraphits wurde auf 20  $\mu\text{m}$  bestimmt. Die durchschnittliche Dicke der Partikel wurde auf 1  $\mu\text{m}$  bestimmt.

2. Das erste Flüssigkeitsmaterial wurde zu einer Schicht in einem Herstellungsverfahren für nasses Papier ausgebildet. Das Gewicht pro Flächeneinheit der Schicht wurde auf 50  $\text{g/m}^2$  bestimmt. Die Dicke der Schicht wurde auf 0,3 mm bestimmt. Bei dem Herstellungsverfahren für nasses Papier wurde die Paste (das erste Flüssigkeitsmaterial) zu dem festen Material und zu Wasser getrennt, dann wurde das resultierende feste Material zu einer Schicht geformt.

3. Kleine Partikel des Kohlenstoff (durchschnittlicher Durchmesser der Partikel: 30 nm) wurden mit Ionen ausgetauschtem Wasser gemischt und weiter mit einem Detergenz dispergiert, dann wurde das andere Flüssigkeitsmaterial hergestellt. Ferner wurde PTFE-Dispersion (Grad D-1, 60 Gew.-% PTFE-Partikeln enthaltend, hergestellt durch DAIKIN INDUSTRIES, LTD) mit dem obigen Flüssigkeitsmaterial gemischt, so dass das Gewichtsverhältnis des PTFE zu dem Kohlenstoffschwarz 1 zu 4 betrug, dann wurde Tinte (zweites Flüssigkeitsmaterial) hergestellt. Zusätzlich kann durch Veränderung der Quantität des PTFE die Eigenschaft der Gasdiffusionsschicht 1 gesteuert werden.

4. Die in dem Verfahren 3 hergestellte Schicht wurde mit der in Verfahren 2 hergestellten Tinte imprägniert. Die imprägnierte Schicht wurde bei ungefähr 80°C für eine Stunde in Umgebungsluft getrocknet. Ferner wurde die einmal getrocknete Schicht bei 380°C für 60 Minuten ausgetrocknet. Auf diese Weise wurde das PTFE in der Tinte geschmolzen und mit der Schicht befestigt. Zu diesem Zeitpunkt wurde die Holzpastenfaser, die in der Schicht enthalten ist, herausgebrannt und beseitigt, dann wurden die Poren, in die Stücke der Holzpastenfaser angeordnet waren, in der Schicht ausgebildet. Die Poren können als Gaskanäle und Wasserableitungskanäle der Brennstoffzelle dienen. Die Gasdiffusionsschicht wurde als die Gasdiffusionsschicht eines Bezugsbeispiels behandelt. Die Dicke der Gasdiffusionsschicht des Bezugsbeispiels betrug 0,31 mm.

5. Die Gasdiffusionsschicht des Bezugsbeispiels wurde in dem Pressform-Set 10, das in Fig. 2(A) gezeigt ist, bei 240°C für 5 Minuten gepresst. Während des Pressens wurden drei Presskräfte für drei Beispiele bestimmt, wie in Tabelle 1 gezeigt ist. Die Gasdiffusionsschicht des Beispiels 1 wurde zu einer Dicke von 0,21 mm gepresst. Die Gasdiffusionsschicht des Beispiels 2 wurde zu der Dicke von 0,20 mm gepresst. Die Gasdiffusionsschicht des Beispiels 3 wurde zu der Dicke 0,18 mm gepresst. Vor dem Pressen wurde die Formfreigabeschicht zwischen die Pressflächen 11a und 12a angebracht, um zu verhindern, dass die Gasdiffusionsschicht 1 an den Pressflächen 11a und 12a anhaftet.

6. Kohlenstoff stützendes Platin (hergestellt durch Johnson Matthey), eine Polymerelektrolytmembranlösung (hergestellt durch Asahi KASEI) und Ionen ausgetauschtes Wasser wurden gemischt, um die Katalysatorpaste auszubilden.

7. Die Katalysatorpaste wurde auf einem geeigneten Polymerfilm basierend nach einem "Doktor Blade"-Verfahren (bzw. Streichverfahren) gerieben oder aufgetragen, wobei das Platin auf dem Polymerfilm für 0,5  $\text{mg/cm}^2$  dispergiert wurde. Der Polymerfilm, auf dem das Platin aufgetragen wurde, wurde für 24 Stunden in Umgebungsluft ausgetrocknet, um den Katalysatorfilm auszubilden. Der Polymerfilm wird nur zum Formgeben der Katalysatorpaste in den Schichten verwendet. Dann wurden die Polymerfilme von den Katalysatorfilmen entfernt, um nicht als ein Bestandteil der Elektrode in der Brennstoffzelle zurückzubleiben.

8. Der Katalysatorfilm wurde in eine notwendige Anzahl kreisförmiger Filme mit einem Durchmesser von 40 mm (einer Fläche von 12,57  $\text{cm}^2$ ) geschnitten. Auf diese Weise wurden die Katalysatorfilme 2 und 4 hergestellt.

9. Die Elektrolytmembran 3 ("Gore Select 40", hergestellt durch Gore-Tex) wurde zwischen den Katalysatorfilmen 2 und 4 eingegeben, so dass die Seite, die nicht mit dem Polymerfilm abgedeckt war, mit jeder Seite der Elektrolytmembran 3 in Kontakt kam. Dann wurde die Elektrolytmembran 3, die zwischen den Katalysatorfilmen 2 und 4 enthalten war, in einer Heißpresse (bei 160°C, unter 4,0 Mpa, für 1,5 Minuten) gepresst, dann wurden die Katalysatorfilme 2 und 4 mit beiden Seiten der Elektrolytmembran 3 jeweils verbunden. Nach dem Verbinden wurden die Polymerfilme auf den Katalysatorfilmen 2 und 4 entfernt. Auf diese Weise wurde die Elektrolytmembran 3 mit den Katalysatorfilmen 2 und 4 erhalten. Ferner wurde die Gasdiffusionsschicht des Bezugsbeispiels in dem obigen Verfahren 5 zu zwei kreisförmigen Gasdiffusionsschichten mit einem Durchmesser von 40,0 mm (einer Fläche von

12,57 cm<sup>2</sup>) geschnitten. Die obige Elektrolytmembran 3 mit den Katalysatorfilmen 2 und 4 wurde ferner zwischen den Gasdiffusionsschichten des Bezugsbeispiels eingegeben. Die Elektrolytmembran 3 und die Gasdiffusionsschichten wurden in der Heißpresse (bei 160°C, unter 4,0 MPa, für 1,5 Minuten) gepresst. Dann wurde das MEA des Bezugsbeispiels erhalten. In den gleichen Verfahren wie das Verfahren, in dem das MEA des Bezugsbeispiels erhalten wurde, wurden die MEAs der Beispiele 1 bis 3 durch jeweilige Verwendung der Gasdiffusionsschichten 1 bis 3 erhalten.

#### Auswertung der Gasdiffusionsschicht

[0044] Die Materialeigenschaften der alleinigen Gasdiffusionsschicht 1 vor dem Verbinden mit der Elektrolytmembran 3 wurden gemessen. Die Dicke der Gasdiffusionsschicht 1 wurde durch ein Mikrometer gemessen. Die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht 1 wurde in folgenden Schritten gemessen: Befestigen der Gasdiffusionsschicht 1 in einer Messeinrichtung, Strömen lassen des getrockneten Stickstoffgases an der Gasdiffusionsschicht 1, im rechten Winkel zu der Oberfläche der Gasdiffusionsschicht 1, und Messen des Differentialdruckes zwischen beiden Seiten der Gasdiffusionsschicht 1. Der Widerstand der Gasdiffusionsschicht 1 wurde gemessen, wobei eine Probe von der Gasdiffusionsschicht 1 zwischen Kohlenstoffplatten gehalten und bei einem Druck von 1,96 MPa gepresst wurde. Die Resultate dieser Messung sind in Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1

Gasdiffusions- schicht	Dicke (mm)	Permeabilität ( $\mu\text{m}/\text{PaS}$ )	Widerstand ( $\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ ) mit 1,96 MPa pressen
Gasdiffusions- schicht des Be- zugsbeispiels	0,31	496	13,1
Gasdiffusions- schicht des Beispiels 1	0,21	135	11,0
Gasdiffusions- schicht des Beispiels 2	0,20	45	9,9
Gasdiffusions- schicht des Beispiels 3	0,18	38	9,5

[0045] Wie aus Tabelle 1 ersichtlich ist, ist, wenn die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht des Bezugsbeispiels (496  $\mu\text{m}/\text{PaS}$ ) als 100% angenommen wird, die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 1 27% ( $135/496 \times 100 = \text{ca. } 27\%$ ), die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 2 9% ( $45/496 \times 100 = \text{ca. } 9\%$ ) und die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 3 7,7% ( $38/496 \times 100 = \text{ca. } 7,7\%$ ). Wenn der Widerstand der Gasdiffusionsschicht des Bezugsbeispiels (13,1  $\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ ) als 100% angenommen wird, ist der Widerstand der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 1 84% ( $11,0/13,1 \times 100 = \text{ca. } 84\%$ ), der Widerstand der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 2 76% ( $9,9/13,1 \times 100 = \text{ca. } 76\%$ ) und der Widerstand der Gasdiffusionsschicht des Beispiels 3 73% ( $9,5/13,1 \times 100 = \text{ca. } 73\%$ ). Durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung wurde die Gasdiffusionsschicht selber dünn gemacht, wurde die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht 1 niedrig eingestellt und der Widerstand der Gasdiffusionsschicht 1 niedrig gemacht. Mit anderen Worten ausgedrückt, kann durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung die Dicke der Gasdiffusionsschicht 1 die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht 1 und der Widerstand der Gasdiffusionsschicht gesteuert werden.

[0046] Wenn die Dicke der Gasdiffusionsschicht 1 des Bezugsbeispiels (0,31 mm) als 100% angenommen wird, ist die Dicke der Gasdiffusionsschicht 1 des Beispiels 1 58% (0,18 mm: gerechnet als  $0,18/0,31 \times 100 = \text{ca. } 58\%$ ). Wenn die Dicke der Gasdiffusionsschicht 1 ungefähr die Hälfte von der vor dem Pressen war, wurde die Gasdiffusionsschicht 1 mit einer ausreichenden mechanischen Steifigkeit zur Verwendung in der Brennstoffzelle erhalten.

#### Auswertung der Brennstoffzelle

[0047] Die Gasdiffusionsschicht 1 des Beispiels 1 wurde an einer aktuellen Brennstoffzelle angebracht, das Variieren des elektronischen Drucks relativ zu der Zellentemperatur der Brennstoffzelle wurde gemessen, als die Brennstoffzelle betrieben wurde. Dann wurde die Differenz zwischen den Eigenschaften des MEAs des Bezugsbeispiels und denen des

MEAs der Beispiele gemessen. Die Gase, die in der Brennstoffzelle erzeugt wurden, wurden durch Hindurchtreten durch Wasser, von dem die Temperatur gesteuert wurde (Blasenbildung), befeuchtet. Die Gase können durch gesättigten Dampf bei Blasenbildungstemperatur befeuchtet werden. Die Betriebsbedingungen der Brennstoffzelle wurden wie folgt bestimmt.

- Elektrische Stromdichte:  $0,74 \text{ A/cm}^2$
- Verwertungsverhältnis des Gases: reiner Wasserstoff/Luft = 80%/15%
- Gasdruck: reiner Wasserstoff/Luft =  $0,2 \text{ MPa}/0,2 \text{ MPa}$
- Temperatur der Blasen: reiner Wasserstoff/Luft =  $90^\circ\text{C}/50^\circ\text{C}$ .

[0048] Die Ergebnisse, die die Ausgabeenergie von der betriebenen Brennstoffzelle zeigen, sind in Fig. 4 gezeigt. Je höher die Zelltemperatur wird, um so mehr trocknet das Innere des MEAs aus. Wenn daher die Zelltemperatur ungefähr  $90^\circ\text{C}$  erreicht, verringert sich drastisch die Ausgabespannung des MEAs in Übereinstimmung mit sowohl dem Bezugsbeispiel als auch dem Beispiel. Wie in Fig. 4 gezeigt ist, wenn die Zelltemperatur höher als ungefähr  $88^\circ\text{C}$  ist, ist die Ausgabespannung des der Beispiele höher als die des Bezugsbeispiels. Der Grund, warum die Ausgabespannung in dem Bezugsbeispiel und in den Beispielen voneinander abweicht, wird folgend beschrieben. Wie bei der MEA des Bezugsbeispiels werden die MEAs der Beispiele in der Dickenrichtung gepresst, wobei die Dichten der MEAs der Beispiele höher als die des Bezugsbeispiels sind, wodurch die Permeabilität der MEAs der Beispiele verringert ist. Daher sind die Wasserhaltekapazität der MEAs, die Kapazitäten zum Halten des Wassers innerhalb der Elektrolytmembran 3 sind, und die Katalysatorschichten 2 und 4 erhöht. Durch Erhöhen der Wasserhaltekapazitäten, wenn die Elektrolytmembran 3 dazu tendiert auszutrocknen (wenn die Zelltemperatur hoch ist), sind die Ausgabespannungen der MEAs bei den Beispielen höher als die des Bezugsbeispiels.

[0049] Wie zuvor beschrieben worden ist, kann das Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht 1 steuern. Wenn die Gasdiffusionsschicht 1, die nicht gepresst ist, dafür bestimmt wird, eine höhere Permeabilität verglichen mit der Zielpermeabilität zu haben, wird das Steuern in dem Pressverfahren die Zielpermeabilität bei den Beispielen nach angestrebtem Ziel eines Designers einstellen. Tatsächlich gibt es eine Vielzahl Arten MEAs, die in den Brennstoffzellen verwendet werden, um den Zweck und die Gestalt des Gasdurchgangs des Trennmittels zu variieren. Demgemäß sind hinsichtlich der Wasserhaltekapazität die MEAs der Beispiele vorrangig zu denen der Bezugsbeispiele, wobei jede Gasdiffusionsschicht 1, die in den MEAs der Beispiele verwendet wird, eine stationäre Brennstoffzelle anpasst, die unter der Bedingung verwendet wird, dass die Gase zu der Brennstoffzelle mit niedrigem Druck vorgesehen werden, wobei die Gase nicht ausreichend befeuchtet sind, und dass die elektrische Stromdichte gering sein kann.

[0050] Wie durch jede Gasdiffusionsschicht 1 der Beispiele 1 bis 3 gezeigt ist, kann durch einfache Mittel zum Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 die Gasdiffusionsschicht 1 hergestellt werden, die sich verschiedenen Arten Brennstoffzellen anpasst.

[0051] Vorteile der Gasdiffusionsschicht 1 durch das Pressverfahren werden im Folgenden in (1) bis (7) beschrieben.

(1) Durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung wird die Gasdiffusionsschicht 1 in ihrer Dickenrichtung gepresst, kann die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht 1 frei und einfach gesteuert werden. Auf diese Weise kann die Wasserführung des MEAs leicht durchgeführt werden, indem auf den Zustand, bei dem die Brennstoffzelle verwendet wird, auf das Material, das für die Gasdiffusionsschicht 1 verwendet wird, und die Gestalt des Trennmittels reagiert wird. Insbesondere hat die Gasdiffusionsschicht 1, die durch das zuvor erwähnte Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt wird, viele Poren im Inneren, da die Holzpastenfasern als Binder herausgebrannt worden ist, und die Poren daraus erzeugt wurden. Als das Material zum Binden der Kohlenstofffaser und des Kohlenstoffschwarz (Ruß) als leitfähiges Material, kann PTFE usw. als weiches Harz verwendet werden, dann kann die Gasdiffusionsschicht 1 mit verschiedenen Kompressionsverhältnissen gepresst werden.

(2) Wie in Tabelle 1 gezeigt ist, kann durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung der Widerstand der Gasdiffusionsschicht 1 pro Flächeneinheit verringert werden. Die Verringerung des Widerstands pro Flächeneinheit verbessert wirkungsvoll den Sammelvorgang des elektrischen Stroms der Gasdiffusionsschicht 1. Der Grund der Verbesserung ist wie folgt. Wenn die Gasdiffusionsschicht 1 in der Dickenrichtung gepresst wird, wird die Kohlenstofffaser, die leitfähig ist, entlang beider Seitenflächen der Gasdiffusionsschicht 1 ausgerichtet, was dazu führen kann, dass die Verbindungspunkte zwischen den Stücken der Kohlenstofffaser erhöht wird, was von der Stärke der Presskraft, die auf die Gasdiffusionsschicht 1 aufgewendet wird, abhängt.

(3) Durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1 kann ihre Dicke gesteuert werden. Die Gasdiffusionsschicht 1 kann mit dem Trennmittel günstig in Kontakt sein, ohne dass die Gasabschirmausführung der Gasdiffusionsschicht 1 beeinträchtigt wird.

(4) Durch Pressen der Gasdiffusionsschicht 1, kann, selbst wenn ein Stück der Kohlenstofffaser von der Seitenfläche der Gasdiffusionsschicht 1 vor dem Pressen hervorsticht, das Faserstück zurückgedrückt werden, wodurch die Flachheit der Gasdiffusionsschicht 1 verbessert wird. Wenn die Flachheit verbessert wird, wird die Oberfläche der Elektrolytmembran 3 weniger durch die Gasdiffusionsschicht 1 beschädigt, wenn sie verbunden werden. Zusätzlich kann jede der Seitenflächen der Katalysatorschichten 2 und 4 die Seitenflächen der Gasdiffusionsschicht 1 mit großem Flächenkontakt berühren, wodurch der Kontaktwiderstand zwischen den Katalysatorschichten 2 und 4 und der Gasdiffusionsschicht 1 verringert wird, wodurch dann die Ausgabespannung der Brennstoffzelle erhöht werden kann.

(5) Wenn im Allgemeinen die Gasdiffusionsschicht an der Brennstoffzelle angebracht wird, wird das MEA durch Druck gehalten, um das andere Bauteil der Brennstoffzelle in der Richtung, in der die Brennstoffzellen gestapelt sind, zu überlappen, wodurch die Gasdiffusionsschicht beim Wandern beansprucht werden kann. Aber die Gasdiffusionsschichten 1 der Beispiele werden mit Hochdruck gepresst, so dass die resultierenden Gasdiffusionsschichten

1 beim Wandern weniger beansprucht werden. Der Druck pro Flächeneinheit, der auf den unter Druck gesetzten Bereich der Gasdiffusionsschicht 1 aufgewendet wird, wenn die Gasdiffusionsschicht 1 an der Brennstoffzelle angebracht wird, wird als F1 angenommen. Der Druck pro Flächeneinheit, der auf die Gasdiffusionsschichten 1 und 5 in dem Pressverfahren aufgewendet wird, wird als F2 angenommen. Wenn F1 größer als F2 ist, hat die Gasdiffusionsschicht 1 weniger Beanspruchung beim Wandern. Dann wird der Kontaktwiderstand zwischen der Gasdiffusionsschicht 1 und dem Trennmittel wirkungsvoll niedrig gehalten.

(6) In den Beispielen wird die Katalysatorpaste, die die Katalysatorschichten 2 und 4 sein sollen, auf den Seitenflächen der Elektrolytmembran 3 aufgetragen, die Katalysatorpaste kann jedoch auf eine Seitenfläche der Gasdiffusionsschicht 1 gegenüber der Elektrolytmembran 3 aufgetragen werden.

(7) In den Beispielen wurden die Gasdiffusionsschichten 1, die nach dem Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt wurden, gepresst. Die obige Gasdiffusionsschicht 1 hat im Inneren Poren, da die Pastenfaser usw., die vor dem Erhitzen gemischt wurde, herausgebrannt oder beseitigt wurde. Ferner enthält das Material zum Binden der Kohlenstofffaser und des Kohlenstoffschwarzes als leitfähiges Material PTFE usw. als das weiche Harz. Wenn daher die Gasdiffusionsschicht 1 in dem Pressverfahren gepresst wird, breitet sich das Harz, das in der Gasdiffusionsschicht 1 enthalten ist, leicht aus, selbst wenn die Kohlenstofffaser leicht in das Harz gleitet, wodurch die Gasdiffusionsschicht 1 mit verschiedenen Kompressionsverhältnissen gepresst werden kann.

[0052] Die Erfindung kann auf eine andere Art Schicht aufgetragen werden, die aus Kohlenstoff gefertigt ist, mit Ausnahme der Gasdiffusionsschicht 1, die durch das Herstellungsverfahren von nassem Papier hergestellt wird. Beispielsweise kann die Gasdiffusionsschicht, die aus Kohlenstoffpapier, Kohlenstoffstoff usw. gefertigt ist, gepresst werden. Wenn die Gasdiffusionsschicht, die aus Kohlenstoffpapier oder Kohlenstoffstoff hergestellt wird, gepresst wird, sollte die Gasdiffusionsschicht nicht mit übermäßigem Druck gepresst werden. Da das Kohlenstoffpapier, der Kohlenstoffstoff usw. geringe Mengen an Harz enthalten und Abschnitte haben, wobei die Kohlenstofffasern in ihrer Dickenrichtung konzentriert sind, kann die Kohlenstofffaser, die das Kohlenstoffpapier, den Kohlenstoffstoff usw. ausbildet, leicht beschädigt werden oder brechen.

[0053] In Übereinstimmung mit der Gasdiffusionsschicht, die aus Kohlenstoffpapier gefertigt ist, enthält das Kohlenstoffpapier das Material zum Binden der Stücke der Kohlenstofffaser (Wärme ausgehärteter Kunststoff). Aber das Material wurde durch Erhitzen in seinem Herstellungsverfahren bereits karbonisiert, wodurch das Material die Stücke der Kohlenstofffaser, die das Kohlenstoffpapier ausbildet, sicher verbindet. In der Gasdiffusionsschicht, die aus Kohlenstoffpapier hergestellt ist, sind die Stücke der Kohlenstofffaser begrenzt, um in dem Material zu gleiten. Wenn die Gasdiffusionsschicht 1 parallel mit dem Pressen erhitzt wird, wird das Material, das die Stücke der Kohlenstofffaser bindet, nicht weich. Wenn die Presskraft übermäßig groß ist, wird die Kohlenstofffaser in dem Pressverfahren leicht gebrochen.

[0054] Andererseits wird gemäß der Gasdiffusionsschicht, die aus dem Kohlenstoffstoff hergestellt ist, Kohlenstoff mit der Kohlenstofffaser gewoben, die in der Ketten- und Schussrichtung läuft. Der Kohlenstoffstoff weist die Abschnitte auf, bei denen die Kettenfasern die Schussfasern überlappen, wobei die Stücke der Kohlenstofffaser in der Dickenrichtung des Kohlenstoffstoffes in dem Abschnitt konzentriert sind, wodurch die Abschnitte schwer gepresst werden können. Wenn die Presskraft übermäßig groß ist, kann die Kohlenstofffaser, die den Kohlenstoffstoff ausbildet, brechen. Es ist nicht vorteilhaft, übermäßigen Druck auf den Kohlenstoffstoff aufzuwenden.

[0055] Die Testergebnisse, die zeigen, wie das Kohlenstoffpapier oder der Kohlenstoffstoff gepresst wird, werden in Tabelle 2 gezeigt. Ein Substrat, das aus Kohlenstoffpapier gefertigt ist, brach, als die Dicke der Kohlenstofffaser relativ zu der Originaldicke (wenn das Verpressbarkeitsverhältnis 31% erreicht) auf 69% verringert wurde. Das Substrat, das aus Kohlenstoffstoff hergestellt ist, brach, als die Dicke des Kohlenstoffpapiers relativ zu der Originaldicke (wenn das Verpressbarkeitsverhältnis 22% erreicht) auf 78% verringert wurde. Es ist vorzuziehen, den Druck in den Pressverfahren derart zu begrenzen, dass das Substrat nicht bricht.

Tabelle 2

Verpressbarkeitsverhältnis bis zum Brechen des Substrats (Verhältnis der Dicke des gepressten Substrats zu der Originaldicke) (%)	
Kohlenstoffstoffsubstrat (GF-20P7, hergestellt durch NIPPON CARBON Co., Ltd.)	69%
Kohlenstoffpapiersubstrat (TORAYCA TGP-H-060, hergestellt durch TORAY)	78%

[0056] Wenn im Gegensatz dazu die Gasdiffusionsschicht 1 der Beispiele, die in dem Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt sind, gepresst werden kann, wenn die Dicke der Beispiele auf 58% relativ zu der des Bezugsbeispiels verringert wird, wird das Verpressbarkeitsverhältnis der Gasdiffusionsschicht 1 42% erreichen ( $100 - 58 = 42$ ). Jedoch treten keine Schwierigkeiten auf, selbst wenn die Dicke der Gasdiffusionsschicht verringert wird, solange das Verpressbarkeitsverhältnis 42% erreicht. Die Gasdiffusionsschicht 1, die in dem Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt worden ist, hat genügend mechanische Festigkeit, selbst wenn die Gasdiffusionsschicht gepresst wird, um dünner zu sein. Wie zuvor beschrieben worden ist, kann die Gasdiffusionsschicht 1, die durch das Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt worden ist, leichter gepresst werden als Kohlenstoffpapier oder Kohlenstoffstoff.

[0057] Die zuvor erwähnten Vorteile der Gasdiffusionsschicht 1 sind für den Fall der Gasdiffusionsschicht 5 anwendbar, da die Gasdiffusionsschicht 5 aus dem gleichen Material gefertigt ist. Zusätzlich kann die Gasdiffusionsschicht 1 von der Gasdiffusionsschicht 5 hinsichtlich des Materials oder der Zusammensetzung abweichen.

[0058] In dem Beispiel werden die Katalysatorschichten 2 und 4 auf die Elektrolytmembran 3 übertragen oder daran befestigt, dann wird die Elektrolytmembran mit der Katalysatorschicht hergestellt. Danach wird die Gasdiffusionsschicht in der Dickenrichtung gepresst. Schließlich wird die Gasdiffusionsschicht mit der Elektrolytmembran mit der Katalysatorschicht verbunden.

[0059] Jedoch ist das Verbindungsverfahren nicht auf das obige beschränkt, die Gasdiffusionsschicht 1 kann mit dem Trennmittel in den folgenden Verfahren verbunden werden. Zuerst werden die Katalysatorschichten auf die Gasdiffusionsschicht 1 aufgetragen. Als Nächstes werden die resultierenden Gasdiffusionsschichten 1 und 5 wie die Elektroden (Trennmittel) mit der Katalysatorschicht in dem Pressverfahren gepresst. Schließlich werden die resultierenden Elektroden mit der Elektrolytmembran verbunden.

[0060] In dem Herstellungsverfahren der Erfindung kann durch Pressen der Gasdiffusionsschicht die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht, die die Elektrode der Brennstoffzelle ausbildet, gesteuert werden. Das Herstellungsverfahren ist wirkungsvoll, um die Gasdiffusionsschicht auszubilden, die die Permeabilität hat, die die Designer anstreben. Ferner kann der Widerstand der Gasdiffusionsschicht durch das Pressverfahren gesteuert werden, wodurch das Herstellungsverfahren in diesem Punkt wirkungsvoll ist.

[0061] In Übereinstimmung mit der Erfindung, wenn das Überlaufen leicht auftreten kann, muss die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht zum Beseitigen des Wassers durch Reduzieren erhöht werden, wodurch die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht höher sein kann. Im Gegensatz dazu, wenn die Elektrolytmembran leicht austrocknet, braucht die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht nicht erhöht werden, wodurch die Permeabilität der Gasdiffusionsschicht durch das Pressverfahren mit höherem Druck gesteuert werden kann, um niedriger zu sein. Wenn die Gasdiffusionsschicht vor dem Pressen Kohlenstofffasern usw. als Substratfasern mit Leitfähigkeit, das flockenförmige Kristallgraphitpulver mit hohem Schlankheitsgrad und das Harz als das Material zum Binden der Stücke der Substratfasern auf dem flockenförmigen Kristallgraphitpulver enthält, kann das Verpressbarkeitsverhältnis der Gasdiffusionsschicht erhöht werden. Es ist vorteilhaft, die Gasdiffusionsschicht mit der Permeabilität usw. als die Eigenschaften herzustellen, die für den Designer beabsichtigt sind.

[0062] Vor dem Pressverfahren hat die Gasdiffusionsschicht, die in dem Herstellungsverfahren für nasses Papier hergestellt worden ist, viele Poren im Inneren, da die Pastenfaser als Binder, die zuvor gemischt wird, aus der Gasdiffusionsschicht herausgebrannt oder beseitigt wird. Die Gasdiffusionsschicht enthält ferner weiches Harz, bspw. PTFE als das Material zum Binden der Substratfaser auf dem Graphitpulver. Wenn die obige Gasdiffusionsschicht in dem Pressverfahren gepresst wird, kann sich das Harz ausdehnen, und die Kohlenstofffaser usw. als Substratfaser kann auf dem Harz gleiten.

[0063] In Übereinstimmung mit der Erfindung, wenn die Gasdiffusionsschicht, das Trennmittel usw. einander in der Dickenrichtung in der Brennstoffzelle überlappen, wird der Oberflächendruck pro Flächeneinheit, der auf die Gasdiffusionsschicht aufgewendet wird, als F1 angenommen, und wenn der Pressdruck pro Flächeneinheit, wenn die Gasdiffusionsschicht gepresst wird, als F2 angenommen wird, ist der Kriechwiderstand der Gasdiffusionsschicht wirkungsvoll, solange F2 größer als F1 ist.

[0064] Eine Brennstoffzelle enthält eine erste Elektrode, die als Brennstoffelektrode verwendet wird, die mit einem Brennstoffgas, das Wasserstoff enthält, versorgt wird, eine zweite Elektrode, die als eine Oxidansielektrode verwendet wird, die mit einem Oxidansgas, das Sauerstoff enthält, versorgt wird, und eine feste Polymerelektrolytmembran, die zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode gehalten wird. In der Brennstoffzelle wird entweder die erste Elektrode oder die zweite Elektrode durch eine Gasdiffusionsschicht ausgebildet, die in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst wird.

#### Patentansprüche

##### 1. Brennstoffzelle, mit:

einer ersten Elektrode, die als Brennstoffelektrode verwendet wird, die mit einem Brennstoffgas versorgt wird, das Wasserstoff enthält;

einer zweiten Elektrode, die als Oxidansielektrode verwendet wird, die mit Oxidansgas versorgt wird, das Sauerstoff enthält; und

einer festen Polymerelektrolytmembran, die zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode gehalten wird,

wobei zumindest die erste Elektrode und die zweite Elektrode durch eine Gasdiffusionsschicht ausgebildet sind, die in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst wird.

2. Elektrode einer Brennstoffzelle zum Ausbilden einer ersten Elektrode als eine Brennstoffelektrode, die mit Wasserstoff versorgt wird, und/oder einer zweiten Elektrode als eine Oxidansielektrode, die mit Sauerstoff versorgt wird, wobei die Elektrode eine Gasdiffusionsschicht enthält, die in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht in einem Pressverfahren gepresst wird.

3. Elektrode der Brennstoffzelle gemäß Anspruch 2, wobei die Gasdiffusionsschicht, die nicht in dem Pressverfahren gepresst wird, eine Substratfaser mit Leitfähigkeit und ein Graphit enthält, dessen Partikel flockenförmig geformt sind, die einen großen Schlankheitsgrad haben, und ein Material zum Binden der Substratfaser auf dem Graphit enthält.

4. Herstellungsverfahren einer Elektrode für eine Brennstoffzelle, mit einem Pressverfahren zum Pressen der Gasdiffusionsschicht, die eine Brennstoffelektrode und/oder eine Oxidansielektrode für die Brennstoffzelle ausbildet, mit einem Pressmittel zum Pressen in der Dickenrichtung der Gasdiffusionsschicht, wobei die Gasdiffusionsschicht vorzugsweise eine Permeabilität hat, die höher als eine Zielpermeabilität sein soll.

# DE 102 22 090 A 1

5. Herstellungsverfahren der Elektrode für die Brennstoffzelle gemäß Anspruch 4, wobei das Pressverfahren ein Heißpressen ist.
6. Herstellungsverfahren der Elektrode für die Brennstoffzelle gemäß einem oder jedem der Ansprüche 4 und 5, wobei ein Formfreigabematerial zwischen der Gasdiffusionsschicht und einer Pressfläche des Pressmittels angeordnet ist.

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

5

10

15

20

25

30

35

40

45

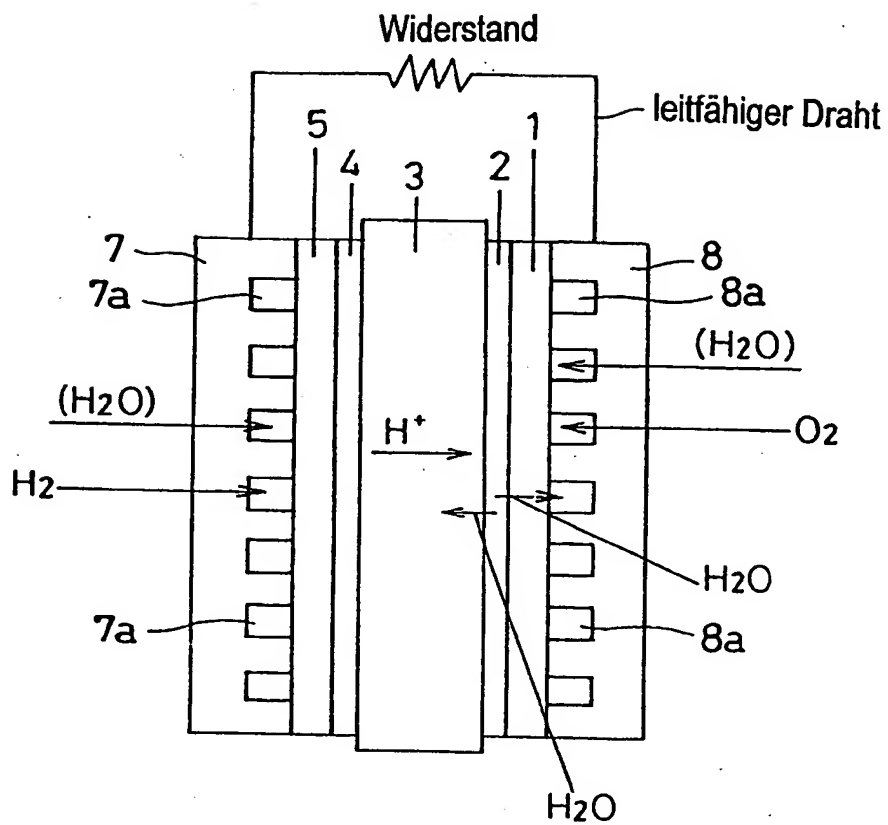
50

55

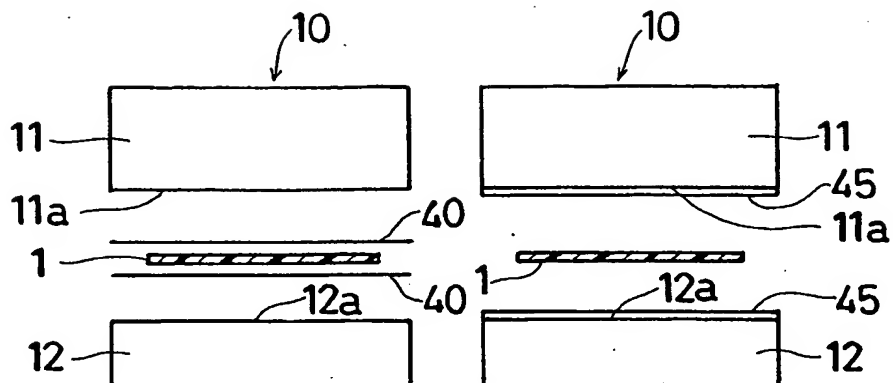
60

65

Fig. 1



F i g . 2



F i g . 3

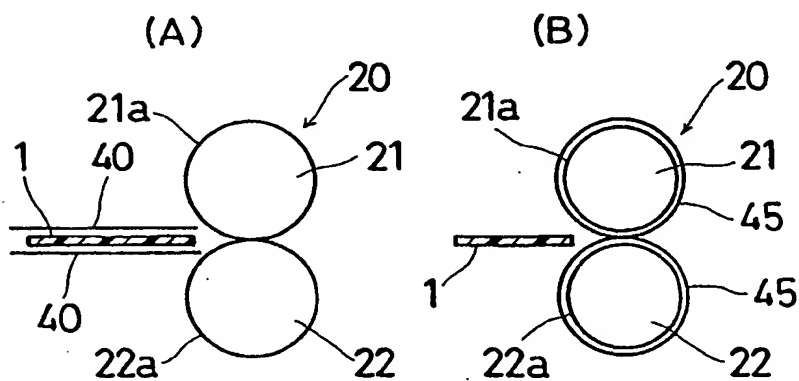


Fig. 4

